拡散ポンプ排気系の回転ポンプ油による汚染とその防止*

村 上 義 夫**・栗 崎 哲 雄***

(昭和44年2月1日受理)

Contamination in Oil-Diffusion-Pumped uhv Systems by Rotary Pump Fluid and Its Preventive Measures

Yoshio MURAKAMI

(Central Research Laboratory, Tokyo Shibaura Electric Co., Ltd., 1 Komukai Toshiba-cho, Kawasaki)

Tetsuo KURISAKI

(Tokuda Seisakusho, Ltd., 371 Higashikochi Futako, Kawasaki)

(Received Feb. 1, 1969)

The mechanism of the oil contamination in a DC-705 oil diffusion-pumped uhv system has been investigated using a high sensitive residual gas analyzer. The system was equipped with a rotary pump and a 4-in. diffusion pump with a water-cooled baffle. It was found that main contaminants in the system come from the cracking of the rotary pump fluid in the diffusion pump boiler. The degradation of the ultimate pressure is proportional to the product of the concentration of the rotary pump fluid and the cracking rate in the hot boiler. In order to prevent the inflow of the fluid into the boiler, it is effective to make a temperature gradient along the foreline tube of the diffusion pump and to evaporate the high vapor pressure fluid on the wall surface warmed up to 70-100°C. For the system being out of operation, we have proposed to place a bakable valve on the foreline which is closed except when both the foreline tube and the valve are warming up with the diffusion pump operation.

1. はじめに

1 台の油拡散ポンプと回転ポンプとからなる排気系で、DC-705 などの新しい作動液体の性質を十分に活かして、信頼のおける超高真空を得ることがわれわれの研究目標である。

前前報¹⁾では圧力揺動の原因となる突沸の防止について、また前報²⁾では、拡散ポンプを用いて圧力が 10^{-9} Torr 以下の超高真空が安定にどこまで達成できるかを水素の逆拡散の面から追求し、それにはボイラで作動液体を多量にしかも安定に蒸発させポンプの圧縮比を大きくすることが重要であることを述べた。

いま一つ解決しなければならない問題は、補助ポンプとして使われる回転ポンプの油が高真空側に逆流することに対する対策であろう。拡散ポンプを使った実際の排気系で到達圧力を左右する一つの原因として回転ポンプ

油による汚染があることはすでにいくつかの論文で指摘されており^{3),4)}、この場合拡散ポンプを2台シリーズに継ぐと回転ポンプ油の影響が減少することが知られている。Kumagai⁵⁾は、油拡散ポンプ自身が上述のような汚染に対して自己で回復する能力を持たなければならないと考え、拡散ポンプの排気口側管に温度勾配をつけ、より高温の側管内壁で汚染蒸気を分溜して汚染源の方へ送り返すことが重要であることを指摘した。実際に側管の温度を上げると到達圧力が低下し、逆に温度を下げるると到達圧力が上昇することが確認されている^{6),7)}。本報告では、この現象についてさらに多くの知見を得るため、高感度の残留ガス分析計を用いて実験した結果を示すとともに、汚染の機構について検討を行なった。最後に、汚染防止の具体的な方法について提案を行なった。

2. 拡散ポンプ動作時の回転ポンプ油による汚染

実験に用いた装置は、回転ポンプ (RP-150)、拡散ポンプ (吸気口径 4 インチの試作品、環状ヒータを用いた

* 昭和43年11月15日 第9回真空に関する連合講演会で講演

** 東芝中研 (川崎市小向東芝町1)

*** 徳田製作所 (川崎市二子字東耕地 371)

Fig. 3 Typical mass spectra obtained when (i) a rotary pump fluid (MR-200) is gently heated. (ii) a relatively high heater input is fed to the diffusion pump as described in Fig. 1 (a), and (iii) DC-705 fluid is heated. Spectra (i) and (iii) were obtained with a low resolution RGA.

そのまま高真空側に逆流するのはむしろ少ない。大部分は、ボイラで熱分解して分子量の小さい蒸気になり、ノズルから噴出した一部が高真空側に逆拡散することによるものと考えられる。

次に、これらの現象が回転ポンプ油に起因していることを明らかにするためにわれわれは二つの実験を行なった。まず、Fig. 1 (a)のような構造の拡散ポンプと回転ポンプとの間に 300 ~ 400°C で十分に活性化したモレキュラーシーブを 50g 詰めにトラップを設け、このトラップより拡散ポンプ側を十分バークしてから、高真空

側の到達圧力と前述のマススペクトルのヒータ入力依存性を数十時間にわたって調べた。結果は、Fig. 2(c)と同様に、ヒータ入力を増加しても炭化水素蒸気の増加による到達圧力の上昇はほとんどみられなかった。ただこの場合は Fig. 1 (c) の構造の場合に比べて水素の圧力揺動が大きく、到達圧力の安定性がやや悪かったが、これはモレキュラーシーブトラップのコンダクタンスが小さかったため拡散ポンプに対する背圧が上昇したことによるものと思われる²⁾。この実験は拡散ポンプの側管が冷えていても回転ポンプからの油の逆流がなければ拡散ポンプの異常現象が起らないことを示している。

いま一つの実験では、径が 80 mm の平底フラスコに回転ポンプ油 MR-200 をおよそ 40cc 入れ、高真空に排気しながら 200W の環状ヒータで加熱して、フラスコから離れた位置に 0°C のトラップを経て取付けてある高周波形質量分析計で回転ポンプ油によるマススペクトルを観察した。Fig. 3 (i) は加熱開始後約 3 時間経過したときのスペクトルである。回転ポンプ油の蒸発熱は 16 ~ 19 kcal/mol と真空ポンプ油のなかでは比較的小さいので、0°C のトラップを設けても油の分子が数時間で分析管まで達するものと考えられるが^{(10),(11)}、大部分はフラスコ内で熱分解した低分子量の蒸気であると思われる。この分析管は分解能が悪く、m/e の大きいところでは個々のピークが区別できないが、このスペクトルと 4 インチ拡散ポンプの実験で側管を水冷しヒータ入力を増加したときに得られる高真空側の残留ガスのスペクトル (Fig. 3(ii)) とを比較してみるとかなりよく似ていることがわかる。一方、Fig. 3 (iii) は同じ高周波形質量分析計で測定した DC-705 の熱分解生成物のマススペクトルであるが、これは(ii)と一致しない。

以上の結果から、実験に用いた拡散ポンプ—回転ポンプの系で冷却トラップを設けないときに起こる到達圧力の異常現象は、回転ポンプの油が逆流して拡散ポンプのボイラ内に侵入し、これが熱分解されて、その一部が高真空側に逆拡散することによるものと考えるのが妥当である。したがって、このような異常現象を起こさせないようにするためには、拡散ポンプの側管部分にゆるやかな温度勾配をつけて 70 ~ 100°C の管内壁で回転ポンプ油を分留して回転ポンプ側に送り戻すようにすればよい。われわれの経験では、側管に向って作動液蒸気を噴射する横形デیفューザを備えた拡散ポンプ¹²⁾は適当な温度勾配をつくり出すのに好都合であるように思われる。

3. 拡散ポンプ停止時の回転ポンプ油による汚染

前節で拡散ポンプの動作中には回転ポンプ油による高

Fig. 4 An experimental system which demonstrates the usefulness of a bakable valve on the foreline of a diffusion pump.

Fig. 5 Pressure vs times in the diffusion-pumped system with and without the bakable valve A. The system was exhausted to 1×10^{-9} Torr or lower and then out of operation for 15 hours before these tests.

真空側の汚染が防止できることがわかったが、拡散ポンプを停止してしまうと逆流が起こり拡散ポンプの吸気口付近やバッフルに回転ポンプ油が容易に達すると思われる。メインバルブがない場合には真空装置全体を油蒸気でよごしてしまうことにもなりかねない。しばしば経験することであるが、よく排気した真空装置をそのまま停止して翌日再び運転を始めたときに前日の状態がなかなか再現できないことがある。これは排気系が回転ポンプ油によって汚染され、次に排気を始めたときに簡単に除去できないためであると思われる。最近真空の経済性という点に注目され、短時間で超高真空に到達できることが真空装置に要求される重要な条件の一つになってきており、こうしたことから拡散ポンプのスターティングアップタイムの短縮、大口径ポンプによる排気速度の増

Fig. 6 Typical mass spectra obtained with and without the bakable valve A. These were recorded after 1-hour reoperation.

大、バッフルや冷却トラップの改善がなされてきたが、ポンプを停止したときに回転ポンプ油の蒸気が逆流する点についての対策も排気時間の短縮にきわめて重要であるといわねばならない。

われわれはここで、拡散ポンプを停止したときにも回転ポンプ油が高真空側にはいりこまないようにするために、 $70 \sim 100^\circ\text{C}$ に加熱された側管の途中にベークブルバルブを設け、バルブも昇温できるようにして、拡散ポンプが動作状態にありバルブの温度が上昇しているときにだけこれを開放できるようにすることを提案したい。これは前節で得られた知見に基づけば容易に思いつくことである。

このようなベークブルバルブの効果を明らかにするために、われわれは Fig. 4 のように、ガラス製の ESV-100G の排気口側にベークブルな電磁バルブ A を設け、その先は通常のバルブ B を経て回転ポンプに接続されている排気系を組立てた。ESV-100G の高真空側には水冷バッフルがあり、その先には B-A ゲージが取り付けられている。ESV-100G には横形ディフューザがあるので、動作時には高温の噴射蒸気により電磁バルブは自然に $70 \sim 100^\circ\text{C}$ に昇温される。容積 V_1 は約 10cm^3 、 V_2 は約 200cm^3 である。

まず、バルブ A、B をあけて、ポンプを動作させながら拡散ポンプの吸気口から高真空側を $200 \sim 250^\circ\text{C}$ で十分にベークした。数時間の後には 10^{-10} Torr 台に達した。次にバルブ A、B を閉じて拡散ポンプの電源を切り、室温 ($20 \sim 25^\circ\text{C}$) でそのまま 15 時間放置した後、再び拡散ポンプを始動した。Fig. 5 の曲線 a は再始動後の

系の圧力経過を示す。この場合B-Aゲージの電子衝撃によるクリーンアップなどは一切行なわなかったが、真空計の指数は30分後にはすでに 5×10^{-9} Torrとなり、1時間後には 2.8×10^{-9} Torrとなった。これに対して、同様な実験でバルブBだけを閉じ拡散ポンプの電源を切ってから15時間経過した後には再始動したときの排気曲線は同図(b)のようになった。後者は前者よりも2桁近く圧力が高く、1時間後で 1.1×10^{-7} Torrであった。

B-Aゲージの代わりに残留ガス分析計を取付けて、それぞれの場合の残留ガスを測定し比較したのがFig. 6である(破線aはバルブA, Bを閉じてから電源を切った場合、実線bはバルブBだけを閉じて電源を切った場合)。これらのマススペクトルはいずれも拡散ポンプの再始動後1時間を経過したときに記録したものである。両者の到達圧力の相違は主としてパラフィン系炭化水素である回転ポンプ油蒸気の有無によることが明らかである。

水蒸気にもかなりの差が認められるが、これはバルブBだけで閉じたときには拡散ポンプの最終段ジェットからバルブBに至る容積ならびにそれを形成している壁の内表面積がバルブAで閉じたときのそれらの値に比べて20倍ほど大きいので、この部分に残った水蒸気が油蒸気と同様に高真空側に広がって器壁や電極に吸着するためと思われる。回転ポンプ油蒸気と水蒸気の吸着熱^{(13), (14)}の相違から、物理吸着している水蒸気は比較的速かに離脱するが、化学吸着している水蒸気は油蒸気よりむしろ離脱しにくいと考えられるので、水蒸気の問題も重要である。いずれにしても、拡散ポンプの最終段ジェットからベークブルバルブAに至る容積は小さい方がよい。

4. 結 論

結論は要約すると次のようになる。

(1) 油拡散ポンプ—回転ポンプの系で冷却トラップを設けないときにしばしばみられる到達圧力の異常現象は、回転ポンプの油が逆流して拡散ポンプのボイラ内に侵入し、これが熱分解されて、その一部が高真空側に逆拡散することによるものと考えられる。この場合、高真空側の汚染の度合は、拡散ポンプのボイラ内に回転ポンプ油蒸気が入ってくる速度と、それがボイラで熱分解される速度の積に関係するようである。

(2) 回転ポンプ油の拡散ポンプ側への逆流は、拡散ポンプの排気口側管を冷やすと増加し、あたためると減少する。排気口側管にゆるやかな温度勾配をつけ、管の中

ほどの温度を70~100°Cにすると回転ポンプ油の逆流がほぼ完全に防止できる。これは蒸気圧の比較的高い回転ポンプ油が高温の側管内壁で蒸発して回転ポンプ側に送り返されることによるものとして理解される。拡散ポンプの作動液体DC-705はこの温度で蒸気圧が 10^{-7} ~ 10^{-8} Torrであり、回転ポンプ側に運ばれる量はきわめて少ない。

(8) ポンプを停止したときに起こる回転ポンプ油蒸気の高真空側への逆流に対しては、加熱できる側管の途中にベークブルバルブを設け、バルブも昇温できるようにして、拡散ポンプが動作状態にありバルブの温度が上昇しているときにだけこれを開放できるようにすれば防止できる。これにより一旦拡散ポンプを停止して十数時間経過後に再始動したときにも常温のままで数十分後に前の超高真空状態(たとえば 10^{-9} Torr台)が容易に得られる。これは真空装置の排気時間短縮にきわめて有効であると思われる。

終りに、本研究中終始激励を与えていただいた東芝中研岡本宏章氏に深く感謝の意を表する。

〔文 献〕

- (1) H. Okamoto and Y. Murakami: Vacuum 17 (1967) 79.
- (2) Y. Murakami and H. Okamoto: Toshiba Review MAR-APR 1968 35.
- (3) J. Hengevoss and W. K. Huber: Vacuum 13 (1963) 1.
- (4) 林・小宮: 超高真空(日刊工業新聞社, 1964) p. 133.
- (5) H. Kumagai: 8th National Vacuum Symp. Trans. (1962) p. 327.
- (6) W. Bächler, R. Clary and H. Forth: 10th National Vacuum Symp. Trans. (1964) p. 153.
- (7) A. R. Huntress and W. R. Schmock: 13th National Vacuum Symp. Abstracts (1966) p. 121.
- (8) G. H. Beynon: Mass Spectrometry and its Applications to Organic Chemistry (Elsevier, 1960).
- (9) C. M. Gosselin and P. J. Bryant: J. Vacuum Sci. Tech. 2 (1965) 293.
- (10) J. P. Hobson: 8th National Vacuum Symp. Trans. (1962) p. 26.
- (11) G. Lewin: Fundamentals of Vacuum Science and Technology (McGraw-Hill, 1965) p. 43.
- (12) M. H. Hablanian and A. A. Landfors: 7th National Vacuum Symp. Trans. (1961) p. 55.
- (13) Y. Tuzi and H. Okamoto: J. Phys. Soc. Japan 13 (1958) 960.
- (14) Y. Tuzi: J. Phys. Soc. Japan 17 (1962) 218.